

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

Bibliographic Fields

Document Identity

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開2002-25570(P2002-25570A)

(43)【公開日】

平成14年1月25日(2002. 1. 25)

Public Availability

(43)【公開日】

平成14年1月25日(2002. 1. 25)

Technical

(54)【発明の名称】

燃料電池用セパレータの処理方法及び燃料電池

(51)【国際特許分類第7版】

H01M 8/02

【FI】

H01M 8/02 B

【請求項の数】

6

【出願形態】

OL

【全頁数】

9

【テーマコード(参考)】

5H026

【Fターム(参考)】

5H026 AA02 BB00 CC03 HH00 HH06 HH10

Filing

【審査請求】

未請求

(21)【出願番号】

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication 2002 - 25570 (P2002 - 25570A)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 14 year January 25 day (2002.1 . 25)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 14 year January 25 day (2002.1 . 25)

(54) [Title of Invention]

TREATMENT METHOD AND FUEL CELL OF SEPARATOR FOR FUEL CELL

(51) [International Patent Classification, 7th Edition]

H01M 8/02

[FI]

H01M 8/02 B

[Number of Claims]

6

[Form of Application]

OL

[Number of Pages in Document]

9

[Theme Code (For Reference)]

5 H026

[F Term (For Reference)]

5 H026 AA02 BB00 CC03 HH00 HH06 HH10

[Request for Examination]

Unrequested

(21) [Application Number]

JP2002025570A

2002-1-25

特願2000-202281 (P2000-202281)

Japan Patent Application 2000 - 202281 (P2000 - 202281)

(22)【出願日】

(22) [Application Date]

平成12年7月4日(2000. 7. 4)

2000 July 4 days (2000.7 . 4)

Parties

Applicants

(71)【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】

[Identification Number]

000002174

000002174

【氏名又は名称】

[Name]

積水化学工業株式会社

SEKISUI CHEMICAL CO. LTD. (DB 69-053-6024)

【住所又は居所】

[Address]

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

Osaka Prefecture Osaka City Kita-ku Nishi Tenma 2-4-4

Inventors

(72)【発明者】

(72) [Inventor]

【氏名】

[Name]

屋良 卓也

Takuya Yara

【住所又は居所】

[Address]

大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内

Inside of Osaka Prefecture Mishima-gun Shimamoto-cho Momoyama 2 - 1 Sekisui Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-6024)

Abstract

(57)【要約】

(57) [Abstract]

【課題】

[Problems to be Solved by the Invention]

大気圧条件下で安定した放電状態を実現させることができ、簡便な装置、かつ、少量の処理用ガスで可能な燃料電池用セパレータの親水化処理方法の提供。

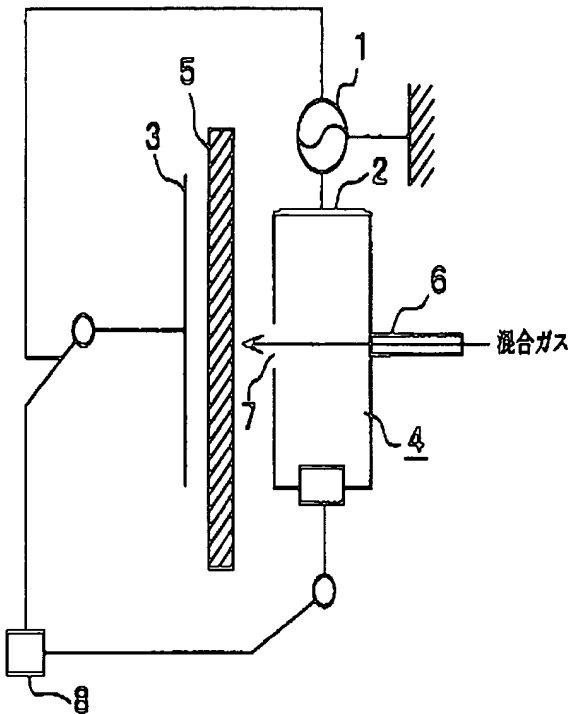
discharged state which is stabilized under atmospheric pressure condition is actualizeddensely to be possible, with simple equipment、 and gas fortreatment of trace offer of hydrophilic treatment method of separator for thepossible fuel cell.

【解決手段】

[Means to Solve the Problems]

燃料電池用セパレータを常圧放電プラズマ処理することを特徴とする燃料電池用セパレータの親水化処理方法であって、常圧放電プラズマ処理が、発生電極間から吹き出した励起ガスによる処理方法又は被処理面の少なくとも一方と対向した面が概略同形状である電極を用いて常圧放電プラズマを発生させ、該プラズマによる処理方法、及び該処理方法で得られたセパレータを用いた燃料電池。

With hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which ambient pressure plasma discharge treatment doesseparator for fuel cell and densely makes feature, ambient pressure plasma discharge treatment,generating ambient pressure plasma discharge making use of electrode where surface whichopposes with at least one of treatment method or surface being treated with excitation gas whichis blown out from between occurrence electrode is outline same shape, fuel cell. which uses separator which with said plasma is acquired with treatment method、 and said treatment method



Claims

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

燃料電池用セパレータを常圧放電プラズマ処理することを特徴とする燃料電池用セパレータの親水化処理方法。

【請求項 2】

常圧放電プラズマ処理が、発生電極間から吹き出した励起ガスによる処理であることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法。

【請求項 3】

常圧放電プラズマ処理が、燃料電池用セパレータ処理面の少なくとも一方と対向した面が概略同形状である電極を用いて放電プラズマを発生させ、該プラズマによる処理であることを特徴とする請求項 1 記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法。

【請求項 4】

常圧放電プラズマ処理が、一の電極にガス吹き出し口を備えた固体誘電体容器を配設し、当該

[Claim(s)]

[Claim 1]

hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which ambient pressure plasma discharge treatment does theseparator for fuel cell and densely makes feature.

[Claim 2]

ambient pressure plasma discharge treatment, is treatment with excitation gas which is blown out from between occurrence electrode and hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in Claim 1 which densely is made feature.

[Claim 3]

ambient pressure plasma discharge treatment, generating plasma discharge making use of electrode where the surface which opposes with at least one of separator treated surface for the fuel cell is outline same shape, it is a treatment with said plasma and hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in the Claim 1 which densely is made feature.

[Claim 4]

When ambient pressure plasma discharge treatment, arranges solid dielectric container which provides gas blowing nozzle

ガス吹き出し口に対向させて他の電極を設け、当該ガス吹き出し口と他の電極との間に燃料電池用セパレータを配置し、当該ガス吹き出し口から処理用ガスを連続的に排出させると同時に、当該一の電極と当該他の電極間に電界を印加することによって放電プラズマを発生させる放電プラズマ処理方法であって、電極間に印加する電界が、パルス化されたものであって、その立ち上がり時間及び立ち下がり時間が40ns~100 μ s、かつ、電界強度が1~100kV/cmであることを特徴とする請求項2記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法。

【請求項5】

常圧放電プラズマ処理が、互いに対向する一対の電極で構成され、その一方または双方の電極の対向面が固体誘電体で被覆されてなる対向電極を、処理用ガス雰囲気の大気圧近傍下に配置し、その対向電極間に燃料電池用セパレータを配置した状態で、対向電極間に、パルス立ち上がり時間が20 μ s以下、パルス継続時間が1~50 μ s、周波数が1~50kHz、電界強度が50~100kV/cmのパルス電圧を印加するものであることを特徴とする請求項3記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法。

【請求項6】

請求項1乃至5いずれか1項に記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法により得られたセパレータを用いてなることを特徴とする燃料電池。

Specification

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池用セパレータの放電プラズマ処理による親水化処理方法及び燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

プラスチック及び、無機物等の固体の表面処理方法としては、 $1.333 \sim 1.333 \times 10^4$ Paの圧力でグロー放電プラズマを発生させるドライプロセスによるものが広く知られている。

この方法では、圧力が 1.333×10^4 Paを超えると、放電が局所的になりアーク放電に移行し、

for one electrode, opposes to this said gas blowing nozzle and provides other electrode, arranges these separator for fuel cell between this said gas blowing nozzle and other electrode, from this said gas blowing nozzle discharges gas for treatment in continuous simultaneously, In electrode of this said one and between this said other electrode with the plasma discharge treatment method of generating plasma discharge by fact that imparting it does electric field, electric field which imparting is done, being something which pulsing is done between electrode, rise time and fall time 40 ns~100 μ s, and, electric field strength is 1 - 100 kV/cm and hydrophilic treatment method of separator for the fuel cell which is stated in Claim 2 which densely is made feature.

[Claim 5]

ambient pressure plasma discharge treatment, is formed with pair of electrodes which opposes mutually, with the state which arranges counterelectrode where on other hand or opposing surface of both electrode is covered with solid dielectric and becomes, under atmospheric pressure vicinity of gas atmosphere for treatment, arranges separator for fuel cell between counterelectrode, between counterelectrode, pulse rise time 20 μ s or less, pulse duration 1 - 50 μ s, frequency 1 - 50 KHz, electric field strength are something which the pulse voltage of 50 - 100 kV/cm imparting is done and hydrophilic treatment method of these separator for fuel cell which is stated in Claim 3 which densely is made feature.

[Claim 6]

fuel cell. which becomes making use of separator which is acquired and with hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in Claim 1 to 5 any one claim densely makes feature

[Description of the Invention]

[0001]

[Technological Field of Invention]

this invention regards hydrophilic treatment method and fuel cell with plasma discharge treatment of these separator for fuel cell.

[0002]

[Prior Art]

As surface treatment method of plastic and inorganic substance or other solid, thing is widely known with dry process which generates glow discharge plasma with pressure of $1.333 - 1.333 \times 10^4$ Pa.

With this method, when pressure exceeds 1.333×10^4 Pa, discharge to become localized, to move to arc discharge,

耐熱性の乏しいプラスチック基板への適用が困難になるので、 $1.333 \sim 1.333 \times 10^4 \text{ Pa}$ の低圧下で処理を行うことが必要である。

【0003】

上記表面処理方法は、低圧での処理が必要とされるので、真空チャンバー、真空排気装置等が設置されなければならない、表面処理装置は高価なものとなり、また、この方法により大面積基板を処理する場合には、大容量の真空容器、大出力の真空排気装置が必要になるために、表面処理装置は、更に高価なものとなる。

また、吸水性の高いプラスチック基板の表面処理を行う場合には、真空引きに長時間を要するので、処理品がコスト高になる等の問題も有している。

【0004】

特公平 2-48626 号公報には、細線型電極を用いた薄膜形成方法が開示されている。

この薄膜形成方法は、ヘリウム等の不活性ガスと含ふ素ガスとモノマーガスとを混合し、複数の開孔を有する多孔管から基板近傍のグロー放電プラズマ域に供給することにより、基板上に薄膜を形成するものである。

【0005】

この薄膜製造方法は、大気圧でグロー放電プラズマを発生させるので、装置や設備の低コスト化が可能であり、大面積基板の処理も可能となる。

しかし、この薄膜製造方法では、処理容器内部に平板型電極又は曲面状電極が併用されているので、この装置は、一層の簡略化が可能である。

しかしながら、現状では基材の大きさや形状が制約されるので、任意の位置を表面処理することは容易ではない。

【0006】

特開平 5-275193 号公報には、固体誘電体が配設された電極間に、希ガスと処理用ガスとからなる混合ガスを一方向への送流状態に保持し放電プラズマを発生させる基材表面処理装置が開示されている。

しかし、この表面処理装置は、開放系の大気圧状態で放電プラズマを発生させる装置であるの

because application to the plastic substrate where heat resistance is scanty becomes difficult, it treats under the low pressure of $1.333 - 1.333 \times 10^4 \text{ Pa}$, it is necessary densely.

【0003】

Because as for above-mentioned surface treatment method, treatment with low pressure is needed, vacuum chamber, vacuum pumping device etc must be installed, surface treatment device becomes expensive ones, in addition, when large surface area substrate is treated with this method, because vacuum pumping device of vacuum container, high output of large capacity becomes necessary, surface treatment device furthermore becomes expensive ones.

In addition, when surface treatment of plastic substrate where water absorbancy is high is done, because lengthy is required in pulling a vacuum, it has possessed also or other problem where processed article becomes high cost.

【0004】

thin film formation method of using narrow line type electrode is disclosed in the Japan Examined Patent Publication Hei 2- 48626 disclosure .

It is something which forms thin film on substrate by from porous tube to which this thin film formation method mixes helium or other inert gas and containing fluorine gas and monomer gas, possesses open pore of plural supplying to glow discharge plasma limits of substrate vicinity.

【0005】

Because this thin film production method generates glow discharge plasma with atmospheric pressure, cost reduction of equipment and facility being possible, also treatment of large surface area substrate becomes possible.

But, because with this thin film production method, flat type electrode or curved surface electrode is jointly used in treatment vessel internal, as for this equipment, more simplification is possible.

But, because with present state size and shape of substrate are restricted, surface treatment desired position it is not easy to do.

【0006】

In Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-275193 disclosure, between electrode where solid dielectric is arranged, mixed gas which consists of rare gas and gas for treatment is kept in the sending style state to one direction and substrate surface treatment device which generates plasma discharge is disclosed.

But, because this surface treatment device is equipment which generates plasma discharge with atmospheric pressure state of

で、外気の影響を無くし、放電プラズマを基材表面に接触させて所望の表面処理を行う場合には、高速で混合ガスを流す必要があり、大流量のガスを流し続けなければならない、満足のいく表面処理装置とはいえない。

【0007】

ところで、近年、電気自動車あるいは住宅用の小型発電設備として燃料電池が注目されている。

燃料電池は水素を燃料とし、空気中の酸素と反応する上でプロトン(水素イオン)と電子の移動が生じて発電を実現する。

この時、空気極とよばれる空気が通過する電極面に水が生成する。

この発生した水を除去しないと燃料電池スタック内部に水がたまり、イオン交換膜の通気性を阻害する。

これを防ぐためにセパレータとよばれる燃料電池の積層構造を分離するブロック体に親水性を付加することが要求されている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記に鑑み、燃料電池用セパレータの簡易な親水化方法及び親水化セパレータを用いた燃料電池を提供する。

【0009】

【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記課題に鑑み鋭意研究した結果、大気圧条件下で安定した放電状態を実現させることができ、簡便な装置、かつ少量の処理用ガスによる放電プラズマ処理方法を用いると、容易に燃料電池用セパレータを親水化処理することができることを見出し、本発明を完成した。

【0010】

すなわち、本発明の第1(請求項1の発明)は、燃料電池用セパレータを常圧放電プラズマ処理することを特徴とする燃料電池用セパレータの親水化処理方法である。

【0011】

また、本発明の第2(請求項2の発明)は、常圧放電プラズマ処理が、発生電極間から吹き出した励起ガスによる処理である第1の発明に記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法で

open system, you lose influence of external air, the surface treatment device which contacting substrate surface, when it does desired surface treatment, it is necessary to let flow mixed gas with high speed and must continue to let flow gas of large flowrate, satisfies plasma discharge you cannot say.

[0007]

By way, fuel cell is observed recently, as miniature electric generating facility for electric automobile or house.

fuel cell designates hydrogen as fuel, when reacting with the oxygen in air, proton (hydrogen ion) with movement of electron occurring, actualizes generation of electricity.

This time, water forms in electrode surface which air which is called air electrode passes.

Unless this water which occurs is removed, water accumulates in fuel cell stack internal, obstructs air permeability of ion-exchange membrane.

To block which separates laminated structure of fuel cell which is called separator in order to prevent this hydrophilicity is required is added densely.

[0008]

[Problems to be Solved by the Invention]

You consider this invention, on description above, you offer simple hydrophilicization method of separator for fuel cell and fuel cell which uses the hydrophilicization separator.

[0009]

[Means to Solve the Problems]

You consider this inventor, to above-mentioned problem and you actualize result of diligent research and discharged state which is stabilized under atmospheric pressure condition densely it to be possible, when plasma discharge treatment method is used with simple equipment, and gas for treatment of trace, hydrophilic treatment is possible separator for fuel cell easily, you discovered densely, completed this invention.

[0010]

It is a hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which these separator for fuel cell ambient pressure plasma discharge treatment does first (Invention of Claim 1) of namely, this invention and, densely makes feature.

[0011]

In addition, as for second (Invention of Claim 2) of this invention, ambient pressure plasma discharge treatment, is hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in first invention which is a treatment with excitation

ある。

【0012】

また、本発明の第 3(請求項 3 の発明)は、常圧放電プラズマ処理が、燃料電池用セパレータ処理面の少なくとも一方と対向した面が概略同形状である電極を用いてプラズマを発生させ、該プラズマによる処理である第 1 の発明に記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法である。

【0013】

また、本発明の第 4(請求項 4 の発明)は、常圧放電プラズマ処理が、一の電極にガス吹き出し口を備えた固体誘電体容器を配設し、当該ガス吹き出し口に対向させて他の電極を設け、当該ガス吹き出し口と他の電極との間に燃料電池用セパレータを配置し、当該ガス吹き出し口から処理用ガスを連続的に排出させると同時に、当該一の電極と当該他の電極間に電界を印加することによって放電プラズマを発生させる放電プラズマ処理方法であって、電極間に印加する電界が、パルス化されたものであって、その立ち上がり時間及び立ち下がり時間が $40\text{ns} \sim 100\mu\text{s}$ 、かつ、電界強度が $1 \sim 100\text{kV/cm}$ であることを特徴とする第 2 の発明に記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法である。

【0014】

また、本発明の第 5(請求項 5 の発明)は、常圧放電プラズマ処理が、互いに対向する一対の電極で構成され、その一方または双方の電極の対向面が固体誘電体で被覆されてなる対向電極を、処理用ガス雰囲気の大気圧近傍下に配置し、その対向電極間に燃料電池用セパレータを配置した状態で、対向電極間に、パルス立ち上がり時間が $20\mu\text{s}$ 以下、パルス継続時間が $1 \sim 50\mu\text{s}$ 、周波数が $1 \sim 50\text{kHz}$ 、電界強度が $50 \sim 100\text{kV/cm}$ のパルス電圧を印加するものであることを特徴とする第 3 の発明に記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法である。

【0015】

また、本発明の第 6(請求項 6 の発明)は、第 1 乃至 5 いずれかの発明に記載の燃料電池用セパレータの親水化処理方法により得られたセパレータを用いてなることを特徴とする燃料電池である。

gas which is blown out from between occurrence electrode.

【0012】

In addition, third (Invention of Claim 3) of this invention, ambient pressure plasma discharge treatment, generating the plasma making use of electrode where surface which opposes with the at least one of separator treated surface for fuel cell is outline same shape, is hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in the first invention which is a treatment with said plasma.

【0013】

In addition, when as for 4 th (Invention of Claim 4) of this invention, ambient pressure plasma discharge treatment, arranges solid dielectric container which provides gas blowing nozzle for one electrode, opposes to this said gas blowing nozzle and provides other electrode, arranges separator for fuel cell between this said gas blowing nozzle and other electrode, from this said gas blowing nozzle discharges the gas for treatment in continuous simultaneously, In electrode of this said one and between this said other electrode with the plasma discharge treatment method of generating plasma discharge by fact that imparting it does electric field, electric field which imparting is done, being something which pulsing is done between electrode, rise time and fall time $40\text{ns} \sim 100\mu\text{s}$, and, electric field strength is $1 \sim 100\text{kV/cm}$ and it is a hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in second invention which densely is made feature.

【0014】

In addition, as for 5 th (Invention of Claim 5) of this invention, ambient pressure plasma discharge treatment, is formed with pair of electrodes which opposes mutually, with state which arranges the counterelectrode where on other hand or opposing surface of both electrode is covered with solid dielectric and becomes, under atmospheric pressure vicinity of gas atmosphere for treatment, arranges separator for fuel cell between counterelectrode, between counterelectrode, pulse rise time $20\mu\text{s}$ or less, pulse duration $1 \sim 50\mu\text{s}$, frequency $1 \sim 50\text{kHz}$, electric field strength are something which pulse voltage of $50 \sim 100\text{kV/cm}$ imparting is done and it is a hydrophilic treatment method of separator for fuel cell which is stated in invention of third which densely is made feature.

【0015】

In addition, it is a fuel cell where 6 th (Invention of Claim 6) of this invention become making use of separator which is acquired and with hydrophilic treatment method of theseparator for fuel cell which is stated in invention of first to 5 any densely make feature.

【0016】

【発明の実施の形態】

本発明は、常圧放電プラズマ処理によって、燃料電池用セパレータに親水性を付与する方法であるが、常圧放電プラズマ処理方法として、発生電極間から吹き出した励起ガスによる方法と、一方と対向した面が概略同形状である電極を用いて放電プラズマを発生させ、該プラズマによって被処理面を処理する方法の2種類の方法があり、いずれの方法を用いても同様の親水性の付与が可能である。

以下、図面を参照しながら、本発明の燃料電池用セパレータを親水化処理する放電プラズマ処理方法及びその装置について説明する。

【0017】

図1は、発生電極間から吹き出した励起ガスを用いる放電プラズマ処理装置の一例の断面を示す図である。

図中、1は、電源を表す。

2は、上記一の電極を表す。

3は、上記他の電極を表す。

4は、上記固体誘電体容器を表す。

5は、燃料電池用セパレータを表す。

6は、固体誘電体容器に処理用ガスを導入するガス導入口を表す。

7は、上記ガス吹き出し口を表す。

8は、一の電極と他の電極とを連結する治具を表す。

【0018】

本発明においては、上記固体誘電体容器4に処理用ガスが導入された状態で、上記電極2と上記電極3との間に電界を印加することによって固体誘電体容器4内部で放電プラズマを発生させる。

固体誘電体容器4内部の気体は、ガス吹き出し口7から上記燃料電池用セパレータ5に向けて吹き出され、プラズマ状態に励起された処理用ガスの成分が燃料電池用セパレータ5の表面に接触して燃料電池用セパレータの処理がなされる。

[0016]

[Embodiment of the Invention]

As for this invention, with ambient pressure plasma discharge treatment, it is a method which grants hydrophilicity to separator for fuel cell generating plasma discharge method and, making use of electrode where surface which opposes on one hand is outline same shape with excitation gas which is blown out from between occurrence electrode, but as ambient pressure plasma discharge treatment method, There is a method of 2 kinds of method which treats surface being treated with said plasma, similar hydrophilic grant is possible making use of any method.

While below, referring to drawing, you explain concerning plasma discharge treatment method and its equipment which hydrophilic treatment it does separator for the fuel cell of this invention.

[0017]

Figure 1 is figure which shows cross section of one example of the plasma discharge treatment device which uses excitation gas which is blown out from between the occurrence electrode.

in the diagram, 1 displays power supply.

2 displays electrode description above one.

3 displays above-mentioned other electrode.

4 displays above-mentioned solid dielectric container.

5 displays separator for fuel cell.

6 displays gas inlet which introduces gas for treatment into the solid dielectric container.

7 displays above-mentioned gas blowing nozzle.

8 displays one electrode and fixture which connects other electrode.

[0018]

Regarding to this invention, with state where gas for treatment is introduced into above-mentioned solid dielectric container 4, between the above-mentioned electrode 2 and above-mentioned electrode 3 by fact that imparting it does electric field it generates plasma discharge with solid dielectric container 4 internal.

gas of solid dielectric container 4 internal is blown out from gas blowing nozzle 7 destined for these separator 5 for above-mentioned fuel cell, component of gas for treatment which excitation is done contacts surface of separator 5 for fuel cell in plasma state and can do treatment of separator for fuel cell.

よって、固体誘電体容器 4 と燃料電池用セパレータ 5 との相対位置を変化させて、燃料電池用セパレータの処理位置を変えることが出来、簡便な装置、かつ、少量の処理用ガスにより、大面積燃料電池用セパレータの処理や、部分指定処理が可能となる。

【0019】

上記電源 1 は、立ち上がり時間及び立ち下がり時間が $40\text{ns}\sim 100\mu\text{s}$ であり、かつ、電界強度が $1\sim 100\text{kV/cm}$ であるパルス電界を印加できるようになされているものである。

上記の範囲の立ち上がり時間及び立ち下がり時間、電界強度のパルス電界を印加することにより、大気圧近傍の条件下における安定した放電状態を実現することが出来る。

このようなパルス電界及び電源の詳細については後述する。

【0020】

上記一の電極 2 及び他の電極 3 の形状としては特に限定されず、図示の平板型形状の他に、円筒型、球体型等の曲面型形状等が挙げられる。

一の電極 2 及び他の電極 3 は、例えば、ステンレス、真鍮等の多成分系の金属からなるものであってもよく、銅、アルミニウム等の純金属からなるものであってもよい。

【0021】

上記一の電極の中心部から固体誘電体容器 4 の内部、ガス吹き出し口 7 の中心部を通り、他の電極 3 に到る距離は、固体誘電体容器 4 の肉厚や材質、基材 6 の肉厚や材質、印加電圧の大きさ等により適宜決定されるが、好ましくは、 $0.5\sim 30\text{mm}$ である。

30mm を超えると、高電圧が必要になり、放電状態がアーク放電に移行しやすくなり、均一な表面処理がしにくくなる。

【0022】

本発明で使用する固体誘電体容器 4 の形状としては特に限定されず、例えば、方形、円筒状、球状等が挙げられる。

【0023】

上記固体誘電体容器 4 の材質としては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、ポリエチレンテ

Depending, relative position of solid dielectric container 4 and separator 5 for fuel cell changing, it changes processing position of separator for fuel cell, it is possible densely, treatment and portion designated treatment of theseparator for large surface area fuel cell become possible depending upon simple equipment, and gas for treatment of trace.

【0019】

As for above-mentioned power supply 1, rise time and fall time being $40\text{ns}\sim 100\mu\text{s}$, at same time, imparting in order for it to be possible pulse electric field where electric field strength is $1\sim 100\text{kV/cm}$, it is something which has been done.

In under condition of atmospheric pressure vicinity, by imparting doing rise time of above-mentioned range and pulse electric field of fall time, electric field strength, discharged state which is stabilized is actualized is possible densely.

This kind of pulse electric field and power supply concerning details it mentions later.

【0020】

As electrode 2 description above one and shape of other electrode 3 especially it is not limited, can list to other than flat type form in illustration, cylinder, sphere type or other curved surface shape of mold etc.

electrode 2 and other electrode 3 of 1 may be something which consists of metal of for example stainless steel, brass or other multicomponent system, to be something which consists of copper, aluminum or other pure metal are possible.

【0021】

It passes by center of internal, gas blowing nozzle 7 of solid dielectric container 4 from center of the electrode description above one, distance which reaches to other electrode 3 is decided appropriately by thickness of solid dielectric container 4 and thickness of material, substrate 6 and size etc of material, applied voltage, but it is a preferably, $0.5\sim 30\text{mm}$.

When it exceeds 30mm , high voltage becomes necessary, discharged state becomes easy to move to arc discharge, uniform surface treatment becomes difficult to do.

【0022】

As shape of solid dielectric container 4 which is used with this invention especially it is not limited, can list for example square, cylinder, spherical shape etc.

【0023】

As material of above-mentioned solid dielectric container 4, you can list for example polytetrafluoroethylene,

レフタレート等のプラスチック、ガラス、二酸化珪素、酸化アルミニウム、二酸化ジルコニウム、二酸化チタン等の金属酸化物、チタン酸バリウム等の複酸化物等が挙げられる。

【0024】

特に、25 deg C 環境下における比誘電率が 10 以上のものである固体誘電体を用いれば、低電圧で高密度の放電プラズマを発生させることができ、処理効率が向上する。

比誘電率の上限は特に限定されるものではないが、現実の材料では 18,500 程度のものが入手可能であり、本発明に使用出来る。

特に好ましくは比誘電率が 10~100 の固体誘電体である。

比誘電率が 10 以上である固体誘電体の具体例としては、二酸化ジルコニウム、二酸化チタン等の金属酸化物、チタン酸バリウム等の複酸化物を挙げることが出来る。

【0025】

チタン酸化合物は強誘電体として知られている。

その結晶構造により比誘電率が異なり、TiO₂ 単体のルチル型結晶構造で比誘電率 80 程度である。

Ba、Sr、Pb、Ca、Mg、Zr 等の金属の酸化物と TiO₂ との化合物では比誘電率が約 2,000~18,500 であり、純度や結晶性によって変化させることが出来る。

【0026】

一方、上記 TiO₂ 単独の場合は、加熱による組成変化が激しいため使用環境が制限されたり、特殊な皮膜形成方法によらないと固有抵抗値が適当な皮膜が得られず放電状態が不安定になる等の不具合がある。

このため TiO₂ 単独よりも Al₂O₃ を含有させて用いた方がよい。

TiO₂ と Al₂O₃ の混合物は、熱的にも安定であるため実用上も好適である。

好ましくは、酸化チタン 5~50 重量%、酸化アルミニウム 50~95 重量%で混合された金属酸化物被膜である。

酸化アルミニウムの割合が 50 重量%未満であると、アーク放電が発生し易く、95 重量%を超えると放電プラズマ発生に高い印加電圧が必要と

polyethylene terephthalate or other plastic, glass, silicon dioxide, aluminum oxide, zirconium dioxide, titanium dioxide or other metal oxide, barium titanate or other compound oxide etc.

[0024]

Especially, if solid dielectric where dielectric constant in under 25 deg C range boundaries is something of 10 or more is used, plasma discharge of high density is generated with low voltage density to be possible, treatment efficiency improves.

upper limit of dielectric constant is not something which especially is limited. With actual material those of 18,500 extent being obtainable, you can use for this invention.

particularly preferably dielectric constant is solid dielectric 10 - 100.

zirconium dioxide, titanium dioxide or other metal oxide, barium titanate or other compound oxide can be listed as embodiment of solid dielectric where dielectric constant is 10 or more.

[0025]

titanic acid chemical compound is known as ferroelectric.

dielectric constant differs depending upon crystal structure, it is a dielectric constant 80 extent with the rutile form crystal structure of TiO₂ unit.

dielectric constant approximately with 2,000 - 18,500, changes can do with the compound of oxide and TiO₂ of Ba, Sr, Pb, Ca, Mg, Zr or other metal densely with purity and crystalline.

[0026]

On one hand, in case of above-mentioned TiO₂ alone, because composition change is extreme with heating, unless use environment is not restricted, depends on special film formation method specific resistance is not acquired suitable film and there is a or other disadvantage where discharged state becomes unstable.

Because of this containing Al₂O₃ in comparison with TiO₂ alone, the one which it uses is good.

mixture of TiO₂ and Al₂O₃, because it is a stability even in thermal, ideal in regard to utility is.

It is a metal oxide coating which is mixed with preferably, titanium dioxide 5~50 weight%, aluminum oxide 50~95 weight%.

When ratio of aluminum oxide is under 50 weight%, arc discharge is likely to occur, when it exceeds 95 weight%, high applied voltage with necessary in plasma discharge

なる。

このような皮膜は、比誘電率が 10~14 程度、固有抵抗が 10^{10} 程度となり、本発明の固体誘電体容器の材質として好適である。

【0027】

又、上記酸化ジルコニウムは、単独の場合、比誘電率は約 12 程度であり、低い電圧で放電プラズマを発生させるのに有利である。

通常、酸化ジルコニウムは酸化イットリウム (Y_2O_3)、炭酸カルシウム ($CaCO_3$)、酸化マグネシウム (MgO) 等を 30 重量%以内で添加して、結晶変態による膨張、収縮を防止し安定化されており、本発明においてもこれらを用いることが出来る。

比誘電率は、添加物の種類や金属酸化物の結晶性によって決定される。

本発明においては、酸化ジルコニウムが少なくとも 70 重量%含有されたものが好ましい。

例えば、酸化イットリウムが 4~20 重量%添加された酸化ジルコニウム被膜は比誘電率が 8~16 程度となり、本発明の固体誘電体として好適である。

【0028】

上記固体誘電体容器 4 は、一の電極 2 が配設されているものである。

図 2、3 は、一の電極と固体誘電体容器の配設の例を示す図である。

固体誘電体容器 4 が方形の場合には、ガス吹き出し口 7 が設けられている面以外の面に一の電極 2 を配設してもよい。

一の電極 2 が配設される固体誘電体容器 4 の面の肉厚としては、0.03~30mm が好ましい。

0.03mm 未満であると、高電圧印加時に絶縁破壊が起こりアーク放電が生じることがある。

【0029】

上記固体誘電体容器 4 は、ガス導入口 6 とガス吹き出し口 7 とを備えるものである。

ガス吹き出し口 7 の形状としては特に限定されず、例えば、スリット状のもの、多数の孔からなるもの、固体誘電体容器が形成する突端状のもの等が挙げられる。

図 4、5、6 は、ガス吹き出し口 7 の例を示す図で

occurrence.

As for this kind of film, dielectric constant becomes 10 - 14 extent, specific resistance 10^{10} extent, it is ideal as material of solid dielectric container of this invention.

[0027]

As for also, above-mentioned zirconium oxide, in case of alone, as for dielectric constant with approximately 12 extent, it is profitable in order to generate plasma discharge with low voltage.

Usually, zirconium oxide yttrium oxide (Y_2O_3), calcium carbonate ($CaCO_3$), adding magnesium oxide (MgO) etc within 30 weight%, prevents blistering, contraction with crystal morphology change and we have been stabilized, regard to this invention and we use these, it is possible densely.

dielectric constant is decided with kind of additive and crystalline of the metal oxide.

Regarding to this invention, those where zirconium oxide is contained 70 weight% at least are desirable.

for example yttrium oxide 4 - 20 weight% as for zirconium oxide coating which is added dielectric constant becomes 8 - 16 extent, it is ideal as solid dielectric of this invention.

[0028]

Above-mentioned solid dielectric container 4 is something where one electrode 2 is arranged.

Figure 2, 3 is one electrode and figure which shows example of arrangement of solid dielectric container.

When solid dielectric container 4 is square, it is possible to surface other than surface where gas blowing nozzle 7 is provided to arrange one electrode 2.

0.03 - 30 mm are desirable as thickness of aspect of solid dielectric container 4 where electrode 2 of 1 is arranged.

0.03 When it is under mm, at time of high voltage impression the insulation breakdown happens and arc discharge occurs, densely is.

[0029]

Above-mentioned solid dielectric container 4 is something which has gas inlet 6 and the gas blowing nozzle 7.

As shape of gas blowing nozzle 7 especially not to be limited, those of the for example slit. Those which consist of multiple holes. You can list those etc of sudden edge condition which solid dielectric container forms.

Figure 4, 5, 6 is figure which shows example of gas blowing

ある。

また、本発明の固体誘電体容器は、図 1 に示すガス導入口を備えた形態以外に、固体誘電体容器自身がガス貯蔵能を有するものであってもよい。

【0030】

図 1 の治具 8 は、他の電極 3 とガス吹き出し口 7 との間隔を自在に変更することができるものである。

治具 8 により、例えば、燃料電池用セパレータ 5 が大面積状物である場合、他の電極 3 とガス吹き出し口 7 との間隔を一定に保持しながら連続的に移動して表面処理することができ、燃料電池用セパレータ 5 の一部のみを処理する場合、他の電極 3 とガス吹き出し口 7 との間隔を自在に変更して連続的な表面処理、部分的な表面処理等をすることができる。

ただし、ガス吹き出し口 7 と燃料電池用セパレータ 5 との間の間隔が長すぎると、空気と接触する確率が高くなり処理効率が落ちるので注意を要する。

【0031】

被処理面の少なくとも一方と対向した面が概略同形状である電極を用いて常圧プラズマを発生させる放電プラズマ処理方法としては、一対の対向電極を有し、当該電極の対向面の少なくとも一方に固体誘電体が設置されている装置において行われる。

プラズマが発生する部位は、電極の一方に固体誘電体を設置した場合は、固体誘電体と電極との間、電極の双方に固体誘電体を設置した場合は、固体誘電体同士の間隔の空間である。

この固体誘電体と電極の間又は固体誘電体同士の間に被処理体である燃料電池用セパレータを配置して処理を行う。

【0032】

上記電極としては、銅、アルミニウム等の金属単体、ステンレス、真鍮等の合金、金属間化合物等からなるものが挙げられる。

上記対向電極は、電界集中によるアーク放電の発生を避けるために、対向電極間の距離が略一定となる構造であることが好ましい。

この条件を満たす電極構造としては、平行平板型、円筒対向平板型、球対向平板型、双曲面対

nozzle 7.

In addition, solid dielectric container of this invention other than shape which has the gas inlet which is shown in Figure 1, may be something where solid dielectric container itself has gas storage talent.

[0030]

fixture 8 of Figure 1 is other electrode 3 and something which can modify interval of gas blowing nozzle 7 unrestrictedly.

With fixture 8, when separator 5 for for example fuel cell is large surface area conditionones, while keeping other electrode 3 and interval of gas blowing nozzle 7 uniformly, moving to continuous, surface treatment it does, it is possible densely, when it treats only portion of separator 5 for fuel cell, other electrode 3 and modifying interval of gas blowing nozzle 7 unrestrictedly, continuous surface treatment, partial surface treatment etc it is possible.

However, when spacing between gas blowing nozzle 7 and separator 5 for the fuel cell is too long, probability which contacts with air to become high, because treatment efficiency falls, caution is required.

[0031]

It possesses counterelectrode of pair as plasma discharge treatment method of generating ambient pressure plasma making use of electrode where surface which opposes with at least one of surface being treated is outline same shape, it is done in the equipment where solid dielectric is installed in at least one of opposing surface of the this said electrode.

site where plasma occurs, when on one hand solid dielectric of the electrode is installed, when between solid dielectric and electrode, both of the electrode solid dielectric is installed, is space between solid dielectric.

Arranging separator for fuel cell, which is a body being treated in this solid dielectric and between electrode or between solid dielectric it treats.

[0032]

As above-mentioned electrode, you can list those which consist of the copper, aluminum or other metal unit, stainless steel, brass or other alloy, intermetallic compound etc.

Above-mentioned counterelectrode in order to avoid occurrence of the arc discharge with electric field focusing, is structure where distance between counterelectrode becomes almost fixed, it is desirable densely.

You can list parallel flat plate type, cylinder-opposing flat plate type, sphere-opposing flat plate type,

向平板型、同軸円筒型構造等が挙げられる。

【0033】

上記固体誘電体は、電極の対向面の一方又は双方に設置する。

この際、固体誘電体と設置される側の電極が密着し、かつ、接する電極の対向面を完全に覆うようにする。

固体誘電体によって覆われずに電極同士が直接対向する部位があると、そこからアーク放電が生じるためである。

【0034】

上記固体誘電体の形状は、シート状でもフィルム状でもよいが、厚みが 0.01~4mm であることが好ましい。

厚すぎると放電プラズマを発生するのに高電圧を要し、薄すぎると電圧印加時に絶縁破壊が起こりアーク放電が発生することがあるためである。

その他に処理方法として対向電極間で発生した放電を利用することもできる。

この場合は、セパレータが凹凸形状を持つため、その形状に追従した電極構造で処理すると、処理面と電極面のギャップ差による処理ムラが防げる。

この際の電極と被処理体の距離は略一定が好ましい。

【0035】

上記固体誘電体の材質としては、ポリテトラフルオロエチレン、ポリエチレンテレフタレート等のプラスチック、ガラス、二酸化珪素、酸化アルミニウム、二酸化ジルコニウム、二酸化チタン等の金属酸化物、チタン酸バリウム等の複酸化物等が挙げられる。

【0036】

また、上記固体誘電体は、比誘電率が 2 以上 (25 deg C 環境下、以下同様)であることが好ましい。

比誘電率が 2 以上の誘電体の具体例としては、ポリテトラフルオロエチレン、ガラス、金属酸化膜等を挙げることができる。

さらに高密度の放電プラズマを安定して発生させるためには、比誘電率が 10 以上の固定誘電

hyperboloid-counter-flat plate type、coaxial cylinder structure etc as electrode structure which fills up this condition.

[0033]

It installs above-mentioned solid dielectric, in one or both of opposing surface of electrode.

In this case, solid dielectric electrode side which is installed sticks, at same time, tries to cover opposing surface of electrode which touches completely.

Without being covered with solid dielectric, when there is a site where the electrode opposes directly, is because arc discharge occurs from there.

[0034]

shape of above-mentioned solid dielectric with sheet and is good with film, but thickness is 0.01 - 4 mm, it is desirable densely.

When it is too thick, high voltage is required in order to generate the plasma discharge, because when it is too thin, insulation breakdown happens at time of applying voltage and arc discharge occurs densely is, is.

In addition it is possible also to utilize discharge which occurs between counterelectrode as treatment method.

In this case, because separator has uneven shape, when it treats with the electrode structure which follows to shape, it can prevent treatment unevenness in gap difference of treated surface and electrode surface.

In this case distance of electrode and body being treated almost uniformity is desirable.

[0035]

As material of above-mentioned solid dielectric, you can list polytetrafluoroethylene, polyethylene terephthalate or other plastic, glass, silicon dioxide, aluminum oxide, zirconium dioxide, titanium dioxide or other metal oxide, barium titanate or other compound oxide etc.

[0036]

In addition, as for above-mentioned solid dielectric, dielectric constant is 2 or more (Under 25 deg C ring boundaries, following similarity), it is desirable densely.

dielectric constant polytetrafluoroethylene, glass, oxidized metal film etc can be listed as embodiment of dielectric of 2 or more.

Furthermore stabilizing plasma discharge of high density, in order to occur, the dielectric constant uses fixed dielectric of

体を用いることが好ましい。

比誘電率の上限は特に限定されるものではないが、現実の材料では 18,500 程度のものが知られている。

比誘電率が 10 以上の固体誘電体としては、酸化チタニウム 5~50 重量%、酸化アルミニウム 50~95 重量%で混合された金属酸化物皮膜、または、酸化ジルコニウムを含有する金属酸化物皮膜からなり、その被膜の厚みが 10~1000 μm であるものを用いることが好ましい。

【0037】

上記電極間の距離は、固体誘電体の厚さ、印加電圧の大きさ、プラズマを利用する目的等を考慮して適宜決定されるが、1~50mm であることが好ましい。

1mm 未満では、電極間の間隔を置いて設置するのに充分でないことがあり、50mm を超えると、均一な放電プラズマを発生させにくい。

【0038】

本発明の燃料電池用セパレータの処理においては、処理用ガスとして以下のような酸素元素含有化合物、窒素元素含有化合物、硫黄元素含有化合物を用いて、基材表面にカルボキシル基、水酸基、アミノ基等の親水性官能基を形成させて表面エネルギーを高くし、親水性表面を得ることが出来る。

【0039】

上記酸素元素含有化合物としては、酸素、オゾン、水、一酸化炭素、二酸化炭素、一酸化窒素、二酸化窒素の他、メタノール、エタノール等のアルコール類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、メタナール、エタナール等のアルデヒド類等の酸素元素を含有する有機化合物等が挙げられる。

これらは単独でも 2 種以上を混合して用いてもよい。

さらに、酸素元素含有化合物と、メタン、エタン等の炭化水素化合物のガスとを混合して用いてもよい。

また、上記酸素元素含有化合物に 50 体積%以下のフッ素元素含有化合物を添加することにより親水化が促進される。

【0040】

上記フッ素原子を含有する有機フッ素系ガスとしては、例えば、4 フッ化炭素(CF_4)、6 フッ化炭素(C_2F_6)、4 フッ化エチレン(CF_2CF_2)、6 フッ化ブ

10 or more, it is desirable densely.

upper limit of dielectric constant is not something which especially is limited. With actual material those of 18,500 extent are known.

dielectric constant it consists of metal oxide film which contains metal oxide film, or the zirconium oxide which are mixed with titanium oxide 5~50 weight%, aluminum oxide 50~95 weight% as solid dielectric of 10 or more, it uses those where thickness of coating is 10 - 1000 μm , it is desirable densely.

【0037】

distance between above-mentioned electrode is decided considering the objective etc which utilizes size, plasma of thickness, applied voltage of solid dielectric, appropriately, but they are 1 - 50 mm, it is desirable densely.

Under 1 mm, placing spacing between electrode, it is not a satisfactory in order to install, is densely, when it exceeds 50 mm, generating uniform plasma discharge, is difficult.

【0038】

Forming carboxyl group, hydroxy group, amino group or other hydrophilic functional group in substrate surface like below making use of oxygen element content compound, nitrogen element content compound, sulfur element content compound at time of treating these separator for fuel cell of this invention, as gas for treatment, it makes surface energy high, can acquire hydrophilic surface.

【0039】

As above-mentioned oxygen element content compound, oxygen, ozone, water, you can list other than carbon monoxide, carbon dioxide, nitrogen monoxide, nitrogen dioxide and organic compound etc which contains methanol, ethanol or other alcohols, acetone, methylethyl ketone or other ketones, methanal, ethanal or other aldehydes or other oxygen element.

Mixing 2 kinds or more even with alone, it is possible to use these.

Furthermore, mixing oxygen element content compound and gas of the methane, ethane or other hydrocarbon compound, it is possible to use.

In addition, hydrophilicization is promoted by adding fluorine element content compound of 50 volume % or less to above-mentioned oxygen element content compound.

【0040】

for example carbon tetrafluoride (CF_4), 6 carbon fluoride (C_2F_6), tetrafluoroethylene (CF_2CF_2), hexafluoro propylene (CF_3CFCF_2), 8 fluoride cyclobutane (C_4F_8) or other

ロピレン(CF_3CFCF_2)、8 フッ化シクロブタン(C_4F_8)等のフッ素-炭素化合物;2 フッ化メタン(CH_2CF_2)、1,1,1,2-4 フッ化エタン(CF_3CFH_2)、1,1,1-3 フッ化プロピレン(CF_3CHCH_2)等のフッ化炭化水素化合物;1 塩化 3 フッ化炭素(CClF_3)、1 塩化 2 フッ化メタン(CHClF_2)等のハロゲン-炭素化合物、6 フッ化硫黄(SF_6)等のフッ素-硫黄化合物等;及びアルコール、有機酸、ケトン等のフッ素置換体などが挙げられる。

特に、安全上の観点から、有害ガスであるフッ化水素を生成しない 4 フッ化炭素、6 フッ化炭素、6 フッ化プロピレン、8 フッ化シクロブタンを用いることが好ましい。

これらは単独でも 2 種以上を混合して用いてもよい。

【0041】

上記有機フッ素系ガスは、少なすぎると酸素含有官能基の導入効果が小さく、多すぎるとフッ素系官能基或いはその重合物による撥水作用が出現し、セパレータの親水化が図りにくいので、酸素ガス中に 0.1~50 体積%添加することが好ましい。

【0042】

上記窒素元素含有化合物としては、窒素、アンモニア等が挙げられる。

窒素元素含有化合物と水素とを混合して用いてもよい。

上記硫黄元素含有化合物としては、二酸化硫黄、三酸化硫黄等が挙げられる。

また、硫酸を気化させて用いることも出来る。

これらは単独でも 2 種以上を混合して用いてもよい。

【0043】

また、分子内に親水性基と重合性不飽和結合を有するモノマーの雰囲気下で処理を行うことにより、親水性の重合膜を堆積させることも出来る。

上記親水性基としては、例えば、水酸基、スルホン酸基、スルホン酸塩基、1 級若しくは 2 級又は 3 級アミノ基、アミド基、4 級アンモニウム塩基、カルボン酸基、カルボン酸塩基等の親水性基等が挙げられる。

fluorine-carbon compound; 2 fluoromethane (CH_2CF_2), 1, 1, 1 and 2 - 4 fluoroethane (CF_3CFH_2), 1, 1, 1 - 3 propylene fluoride (CF_3CHCH_2) or other fluorinated hydrocarbon chemical compounds; primary salt Chemical Formula 3 carbon fluoride (CClF_3), primary salt Chemical Formula 2 fluoromethane (CHClF_2) or other halogen-carbon compound, sulfur hexafluoride (SF_6) or other fluorine-sulfur compound etc; and you can list alcohol, organic acid, ketone or other fluorine substitution body etc as organic fluorine type gas which contains the above-mentioned fluorine atom.

Especially, from viewpoint with respect to safety, carbon tetrafluoride, 6 carbon fluoride, hexafluoro propylene, 8 fluoride cyclobutane which does not form hydrogen fluoride which is a toxic gas is used, it is desirable densely.

Mixing 2 kinds or more even with alone, it is possible to use these.

【0041】

As for above-mentioned organic fluorine type gas, when it is too little, introduction effect of oxygen-containing functional group to be small, when it is many, fluorine type functional group or water-repellent effect to appear with polymer, because hydrophilicization of separator is difficult to assure, 0.1 - 50 volume% it adds in oxygen gas densely it is desirable.

【0042】

As above-mentioned nitrogen element content compound, you can list nitrogen, ammonia etc.

Mixing nitrogen element content compound and hydrogen, it is possible to use.

As above-mentioned sulfur element content compound, you can list sulfur dioxide, sulfur trioxide etc.

In addition, evaporating, sulfuric acid it is possible also to use.

Mixing 2 kinds or more even with alone, it is possible to use these.

【0043】

In addition, it is possible also to accumulate hydrophilic polymer film by treating under atmosphere of monomer which possesses hydrophilic group and polymerizable unsaturated bond in intramolecular.

As above-mentioned hydrophilic group, for example hydroxy group, sulfonic acid group, sulfonate group, primary or you can list secondary or tertiary amino group, amide group, quaternary ammonium salt group, carboxylic acid group, carbonate group or other hydrophilic group etc.

また、ポリエチレングリコール鎖を有するモノマーを用いても同様に親水性重合膜の堆積が可能である。

上記モノマーとしては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、アクリルアミド、メタクリルアミド、N,N-ジメチルアクリルアミド、アクリル酸ナトリウム、メタクリル酸ナトリウム、アクリル酸カリウム、メタクリル酸カリウム、スチレンスルホン酸ナトリウム、アリルアルコール、アリルアミン、ポリエチレングリコールジメタクリル酸エステル、ポリエチレングリコールジアクリル酸エステル等が挙げられる。

これらのモノマーは、単独または混合して用いられる。

上記親水性モノマーは一般に固体であるので、溶媒に溶解させたものを減圧等の手段により気化させて用いる。

上記溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、アセトン等の有機溶媒、水、及び、これらの混合物等が挙げられる。

【0044】

経済性及び安全性の観点から、上記処理用ガスが不活性ガスによって希釈された雰囲気中で処理を行うことが好ましい。

不活性ガスとしては、例えば、ヘリウム、ネオン、アルゴン、キセノン等の希ガス、窒素気体等が挙げられる。

これらは単独でも 2 種以上を混合して用いてもよい。

従来、大気圧近傍の圧力下においては、ヘリウムの存在下の処理が行われてきたが、本発明のパルス化された電界を印加する方法によれば、ヘリウムに比較して安価なアルゴン、窒素等の気体中における安定した処理が可能である。

【0045】

処理用ガスと不活性ガスの混合比は、使用するガスの種類により適宜決定される。

パルス電界を印加する場合は、任意の混合比の雰囲気下で処理が可能であるので、経済性及び安全性の観点から混合比を決定すればよい。

パルス化された電界によらない場合は、処理用ガスの濃度が高すぎると放電プラズマが発生し難くなるため、処理用ガスの濃度は、処理用ガスと不活性ガスとの混合ガス中の 0.01~10 体

In addition, accumulation of hydrophilicity polymer film is possible in same waymaking use of monomer which possesses polyethylene glycol chain.

As above-mentioned monomer, you can list for example acrylic acid, methacrylic acid, acrylamide, methacrylamide, N, N- dimethyl acrylamide, sodium acrylate, sodium methacrylate, potassium acrylate, potassium methacrylate, sodium styrene sulfonate, allyl alcohol, allyl amine, polyethylene glycol dimethacrylic acid ester and polyethylene glycol di acrylic acid ester etc.

These monomer are used, alone or mixing.

Because above-mentioned hydrophilic monomer is solid generally, evaporating those which are melted in solvent with vacuum or other means, it uses.

As above-mentioned solvent, you can list for example methanol, ethanol, acetone or other organic solvent, water, and these mixture etc.

[0044]

From viewpoint of economy and safety, it treats in atmosphere where gas for above-mentioned treatment is diluted with the inert gas, it is desirable densely.

As inert gas, you can list for example helium, neon, argon, xenon or other rare gas, nitrogen gas etc.

Mixing 2 kinds or more even with alone, it is possible to use these.

Until recently, treatment under existing of helium was done in under pressure of atmospheric pressure vicinity,, but in in inexpensive argon, nitrogen or other gas, if pulsing of this invention according to method which electric field which is done the imparting is done, by comparison with helium treatment which is stabilized is possible.

[0045]

gas for treatment and proportion of inert gas are decided appropriately by kind of gas which is used.

When imparting it does pulse electric field, because treatment is possible under atmosphere of proportion of option, if proportion should have been decided from viewpoint of economy and safety.

When it does not depend on electric field which pulsing is done, when the concentration of gas for treatment is too high, because plasma discharge it becomes difficult to occur, concentration of gas for treatment is 0.01 - 10 volume% in

積%であることが好ましく、より好ましくは 0.1~5 体積%である。

【0046】

本発明の励起ガスを用いる処理方法においては、処理用ガスを、図 1 の固体誘電体容器 4 に備えられたガス吹き出し口 7 から連続的に排出させる。

複数種類の処理用ガスを組み合わせて用いたり、処理用ガスを不活性ガスで希釈して用いる場合、図 1 の装置においては、それぞれのガスが、図中に示していない一般のガス流量制御器を介して混合され、ガス導入口 6 から固体誘電体容器 4 内に供給され、これらの混合ガスがガス吹き出し口 7 から排出されるようになされている。

【0047】

上記処理用ガス(不活性ガスで希釈して用いる場合は、処理用ガスと不活性ガスとの混合ガスを指す。以下同じ。)の供給量及び吹き出し流速は、ガス吹き出し口 7 の断面積、燃料電池用セパレータ 5 とガス吹き出し口 7 との間の距離等により適宜決定される。

例えば、ガス吹き出し口 7 の断面積が 100mm^2 である場合には、処理用ガスの供給量としては、流量 5SLM が好ましく、処理用ガスの吹き出し流速としては、流速 830mm/sec が好ましい。

処理用ガスの供給量を増加させる場合には、それに比例して処理用ガスの吹き出し流速が増加し、表面処理に要する時間が短縮される。

【0048】

本発明の放電プラズマ処理方法を行う圧力条件としては特に限定されず、大気圧近傍の圧力下における処理が可能である。

大気圧近傍の圧力下とは、 $1.333 \times 10^4 \sim 10.664 \times 10^4\text{Pa}$ の圧力下を指す。

圧力調整が容易で、装置が簡便になる $9.331 \times 10^4 \sim 10.397 \times 10^4\text{Pa}$ の範囲が好ましい。

【0049】

本発明の処理方法が適用される燃料電池用セパレータは、主として黒鉛が用いられてきたが、量産性の面からステンレス製のものも検討されてきている。

mixed gas of gas and inert gas for treatment, it is desirable densely, it is a more preferably 0.1~5 volume%.

[0046]

From gas blowing nozzle 7 which can provide gas for treatment, for the solid dielectric container 4 of Figure 1 regarding treatment method which uses excitation gas of the this invention, it discharges in continuous.

It uses combining gas for treatment of multiple kinds, dilutes the gas for treatment with inert gas and when it uses, respective gas, through general gas flow regulator which has not been shown in the in the diagram, regarding equipment of Figure 1, it is mixed, from gas inlet 6 is supplied inside solid dielectric container 4, In order for these mixed gas to be discharged from gas blowing nozzle 7, you have done.

[0047]

supply amount and blowing out flow rate of gas (Diluting with inert gas, when it uses, it points to mixed gas of the gas and inert gas for treatment. Below same.) for above-mentioned treatment are decided appropriately separator by the distance etc between 5 for cross-sectional area, fuel cell of gas blowing nozzle 7 and gas blowing nozzle 7.

When cross-sectional area of for example gas blowing nozzle 7 is 100mm^2 , flow 5SLM is desirable as supply amount of gas for treatment, flow rate 830mm/sec is desirable as the blowing out flow rate of gas for treatment.

supply amount of gas for treatment when it increases, being proportionate to that, blowing out flow rate of gas for treatment increases, time when it requires in surface treatment is shortened.

[0048]

As pressure condition which does plasma discharge treatment method of this invention treatment which especially is not limited, in under pressure of atmospheric pressure vicinity is possible.

Under pressure of atmospheric pressure vicinity, it points to under pressure of $1.333 \times 10^4 \sim 10.664 \times 10^4\text{Pa}$.

pressure adjustment being easy, range of $9.331 \times 10^4 \sim 10.397 \times 10^4\text{Pa}$ where equipment become simple is desirable.

[0049]

As for separator for fuel cell where treatment method of this invention is applied, graphite was used mainly, but also those of stainless steel have been examined from aspect of mass productivity.

燃料電池内では、格子状の流路を持ち水素が供給されるセパレータ、燃料極、イオン交換膜、空気(酸素)極、空気(酸素)が供給されるセパレータよりなるサンドイッチ構造のセルを積層したスタックで用いられるものである。

したがって、セパレータの両面は、独立した流路を持ち、片面が水素、もう一方の片面が空気および生成した水の流路となっているので、生成した水をより流れやすくするために親水性を付加することが必要である。

そうしないと、燃料電池スタック内部に水がたまり、イオン交換膜の通気性を阻害することになる。

また、該燃料電池用セパレータは、水素及び空気の通気性並びに発生した水の流れのために表面に凹凸(流路)を有しており、本発明の親水化処理方法は、このような形状物に対する親水化処理にも適し、かつ耐久性、生産性に優れた親水化処理方法である。

【0050】

放電プラズマ処理に要する時間は、処理の目的、印加電圧の大きさ、被処理体の材質、混合ガス配合等によって適宜決定され、セパレータを加熱又は冷却した状態で処理を行ったり、化学的な前処理又は後処理を組み合わせることも出来る。

【0051】

以下、本発明のパルス電界について説明する。

図7にパルス電圧波形の例を示す。

波形(a)、波形(b)はインパルス型、波形(c)はパルス型、波形(d)は変調型の波形である。

図7には電圧印加が正負の繰り返しであるものを挙げたが、正又は負のいずれかの極性側に電圧を印加するタイプのパルスを用いてもよい。

また、直流が重畳されたパルス電界を印加してもよい。

本発明におけるパルス電界の波形は、ここで挙げた波形に限定されず、さらに、パルス波形、立ち上がり時間、周波数の異なるパルスを用いて変調を行ってもよい。

上記のような変調は高速連続表面処理を行う

Inside fuel cell, separator, fuel electrode, ion-exchange membrane, air where hydrogen is supplied with flow path of lattice (oxygen) extremely, it is something which is used with the stack which laminates cell of sandwich structure which consists of the separator where air (oxygen) is supplied.

Therefore, as for both surfaces of separator, because one surface one surface of hydrogen, another air and has become flow path of water which is formed with flow path which becomes independent, water which is formed compared to flow hydrophilicity is added is necessary easily densely for sake of.

So, unless it does, water accumulates in fuel cell stack internal, means to obstruct air permeability of ion-exchange membrane.

In addition, separator for said fuel cell air permeability of hydrogen and air and for flowing water which occurs has had relief (flow path) in surface, it is a hydrophilic treatment method hydrophilic treatment method of this invention being suited for also hydrophilic treatment for this kind of shape, at same time being superior in durability, productivity.

【0050】

It is possible also time when it requires in plasma discharge treatment to be decided appropriately with material, mixed gas combination etc of size, body being treated of the objective, applied voltage of treatment, to treat with state which separator heating or cooling is done, to treat combining chemical pretreatment or postprocessing.

【0051】

You explain below, concerning pulse electric field of this invention.

Example of pulse voltage waveform is shown in Figure 7.

waveform (a), as for waveform (b) impulse type, as for waveform (c) pulse type, as for waveform (d) it is a waveform of modulation type.

Those where applying voltage is positive and negative repetition were listed to Figure 7, but making use of pulse of type which voltage imparting is done on polarity side of any of positive or negative it is good.

In addition, direct current imparting may do pulse electric field which superimposition is done.

waveform of pulse electric field in this invention is not limited in waveform which is listed here, is possible to do modulation furthermore, making use of pulse where pulse waveform, rise time, frequency differs.

As description above modulation is suitable although it treats

のに適している。

【0052】

上記パルス電界の立ち上がり時間及び立ち下がり時間は、40ns~100 μ s であることが好ましい。

100 μ s を超えると放電状態がアークに移行しやすく不安定なものとなり、安定した放電状態を実現しにくくなる。

また、立ち上がり時間及び立ち下がり時間が短いほどプラズマ発生の際のガスの電離が効率よく行われるが、40ns 未満では設備上実現しにくい。

より好ましくは 50ns~5 μ s である。

なお、ここでいう立ち上がり時間とは、電圧変化が連続して正である時間、立ち下がり時間とは、電圧変化が連続して負である時間を指すものとする。

【0053】

上記パルス電界の電界強度は、1~100kV/cm であることが好ましい。

1kV/cm 未満であると処理に時間がかかりすぎ、100kV/cm を超えるとアーク放電が発生しやすくなる。

【0054】

上記パルス電界の周波数は、1kHz~100kHz であることが好ましい。

1kHz 未満であると処理に時間がかかりすぎ、100kHz を超えるとアーク放電が発生しやすくなる。

また、ひとつのパルス電界が印加される時間は、1 μ s~1000 μ s であることが好ましい。

1 μ s 未満であると放電が不安定なものとなり、1000 μ s を超えるとアーク放電に移行しやすくなる。

より好ましくは、3 μ s~200 μ s である。

上記ひとつのパルス電界が印加される時間とは、図 7 中に例を示してあるが、ON、OFF の繰り返しからなるパルス電界における、ひとつのパルスの連続する ON 時間を言う。

このような方法により、図 8 に示すような立ち上がり時間、立ち下がり時間の非常に早いパルス信号を得ることができる。

【0055】

high speed continuous surface.

[0052]

rise time and fall time of above-mentioned pulse electric field are 40 ns~100 μ s, it is desirable densely.

When it exceeds 100 μ s, discharged state to be easy to move in the arc, becomes unstable ones becomes difficult to actualize discharged state which is stabilized.

In addition, case of extent plasma generation where rise time and the fall time are short ionization of gas is efficiently done, but under 40 ns on facility it is difficult to actualize.

It is a more preferably 50 ns~5 μ s.

Furthermore, rise time referred to here, voltage change continuing, the time when it is correct, fall time, voltage change continuing, point to the time when it is a negative number.

[0053]

electric field strength of above-mentioned pulse electric field is 1 - 100 kV/cm, it is desirable densely.

When it is under 1 kV/cm, time is required for treatment too much, when it exceeds 100 kV/cm, arc discharge becomes easy to occur.

[0054]

frequency of above-mentioned pulse electric field is 1 KHz~100 KHz, it is desirable densely.

When it is under 1 KHz, time is required for treatment too much, when it exceeds 100 KHz, arc discharge becomes easy to occur.

In addition, one pulse electric field time when imparting it is done, is 1 μ s~1000 μ s, it is desirable densely.

When it is under 1 μ s, discharge becomes unstable ones, when it exceeds 1000 μ s, becomes easy to move to arc discharge.

It is a more preferably, 3 μ s~200 μ s.

pulse electric field of above-mentioned one time when imparting it is done, example is shown in Figure 7, but in pulse electric field which consists of the repetition of ON, OFF, it is ON time which one pulse continues.

With this kind of method, pulse signal where kind of rise time, fall time which is shown in Figure 8 is very quick can be acquired.

[0055]

【実施例】

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

なお、以下の実施例では、高電圧パルス電源(ハイデン研究所社製、半導体素子:IXYS 社製、型番 IXBH40N160-627G を使用)を用いた。

【0056】

実施例 1

図 4 に示したガス吹き出し口を備えた図 1 に示すような下記の放電プラズマ処理装置を移動させながら用いて、200×200mm の黒鉛製燃料電池用セパレータに下記の条件のプラズマ処理を行い親水化処理を行った。

【0057】

放電プラズマ処理装置

110mm(W)×5mm(D)×50mm(H)の固体誘電体容器 4 は、銅製容器の内面に比誘電率が 12 のアルミナ系誘電体を 1mm 厚に溶射したものでガス導入口 6、横 100mm×縦 1mm のスリット状のガス吹き出し口 7 が設けられ、ガス吹き出し口 7 近傍に 100×30×1mm の銅製の電極 2 が配設されている。

また、もう一方の 100×30×1mm の銅製の電極 3 がセパレータ 5 の裏面に、電極 2 と 10mm の間隔を維持し配設されている。

また、吹き出し口とセパレータ間は、略 1mm を保つようにした。

【0058】

プラズマ処理条件

処理ガス:酸素 1SLM+二酸化硫黄 0.3SLM+アルゴン 8.7SLM の混合ガス

放電条件:波形(a)、立ち上がり/立ち下がり時間 10 μ s、波高値 7.2kV、周波数 10KHz、処理時間 5 秒(処理時間の間停止し、5 秒経過後未処理部分に吹き出し口を移動し、処理した。)

【0059】

処理後の黒鉛製燃料電池用セパレータの表面状態を ESCA にて分析した結果、表面の酸素量は 20atom%、硫黄量は 5atom%であった。

[Working Example(s)]

Putting out Working Example below, furthermore you explain this invention in detail, but this invention is not something where are limited in only these Working Example.

Furthermore, with Working Example below, high voltage pulse power supply (You use high デン research laboratory supplied, semiconductor element:IXYS supplied, model number IXBH40N160-627G) was used.

[0056]

Working Example 1

While moving below-mentioned plasma discharge treatment kind of device which is shown in Figure 1 which has gas blowing nozzle which is shown in Figure 4 using, it did plasma treatment of below-mentioned condition in separator for the graphite fuel cell of 200 X 200 mm and did hydrophilic treatment .

[0057]

plasma discharge treatment device

As for solid dielectric container 4 of 110 mm (W) X 5 mm (D) X 50 mm (H), in inside surface of copper container dielectric constant alumina-based dielectric of 12 being something which flame spraying is done in 1 mm thickness, it can provide gas blowing nozzle 7 of slit of gas inlet 6, side 100 mm X vertical 1 mm, electrode 2 of copper of 100 X 30 X 1 mm is arranged in gas blowing nozzle 7 vicinity.

In addition, electrode 3 of copper of 100 X 30 X 1 mm of another in the back surface of separator 5, maintains spacing of electrode 2 and 10 mm and is arranged.

In addition, it tried between blowing orifice and separator, to maintain approximately 1 mm.

[0058]

plasma treatment condition

mixed gas of processed gas: oxygen 1SLM+sulfur dioxide 0.3SLM+argon 8.7SLM

discharge condition: waveform (a), raising/lowering time 10 ;mu s, wave peak value 7.2 kV, frequency 10 KHz, process time 5 second (Between process time it stopped, 5 second lapses later moved blowing orifice to untreated portion, treated.)

[0059]

As for result of analyzing surface state of separator for graphite fuel cell after treating with ESCA, as for amount of oxygen of surface as for 20 atom%, sulfur amount they were 5 atom%.

また、処理後のセパレータの水に対する静的接触角を、 $2\mu\text{L}$ の水滴を液滴し、半自動接触角計(協和界面科学社製、CA-X150)で測定した。

その結果、 0° (濡れ広がり状態)まで親水化されたことが分かった。

さらに、処理品を 80°C 、湿度 95% の環境下で 1 ヶ月間経過後の静的接触角も 0° であり、親水性が維持されていた。

【0060】

これは、本発明のプラズマ処理により、表面にスルホン基およびカルボン酸基からなる親水基が存在することで、親水化が実現されたものであることを示している。

【0061】

実施例 2

図 9 に示した電極間に黒鉛製燃料電池セパレータを配置し、電極間に以下の放電プラズマ処理条件で放電処理を行った。

また、セパレータと電極間との距離は、いずれの部分においても 2mm となるようにセットした。

ここで、図 9 において、11 は電源を表す。

12 は形状追従型電極である上部電極を表す。

13 は平板型電極である下部電極を表す。

14 は固体誘電体を表す。

15 は黒鉛製燃料電池用セパレータを表す。

【0062】

プラズマ処理条件

処理ガス:酸素 1SLM+二酸化硫黄 0.3SLM+アルゴン 8.7SLM の混合ガス

放電条件:波形(a)、立ち上がり/立ち下がり時間 $10\mu\text{s}$ 、波高値 7.2kV、周波数 10KHz、処理時間 5 秒

【0063】

処理後の黒鉛製燃料電池用セパレータの表面状態を ESCA にて分析した結果、表面の酸素量は 25atom%、硫黄量は 6atom% であった。

また、処理後のセパレータの水に対する静的接触角を、 $2\mu\text{L}$ の水滴を液滴し、半自動接触角計(協和界面科学社製、CA-X150)で測定した。

In addition, static contact angle for water of separator after treating, the droplet it did water drop of $2\mu\text{L}$, measured with semiautomatic angle of contact meter (Kyowa Interface Science Co. Ltd. (DB 69-270-5080) supplied, CA-X150).

As a result, 0° hydrophilicization it was done to (Getting wet spreading state), understood densely.

Furthermore, processed article 0° with, hydrophilicity had been maintained also static contact angle of 1 month period lapse later under environment of 80°C , humidity 95%.

【0060】

This, it is something where hydrophilicization is actualized by fact that hydrophilic group which consists of sulfone group and carboxylic acid group in surface with plasma treatment of this invention, exists, it has shown densely.

【0061】

Working Example 2

graphite fuel cell separator was arranged between electrode which is shown in Figure 9, between electrode discharge treatment was done under plasma discharge treatment conditions below.

In addition, in order 2 mm ago regarding whichever portion, it set distance of separator and between electrode.

Here, 11 displays power supply in Figure 9.

12 displays upper electrode which is a shape following type electrode.

13 displays bottom electrode which is a flat type electrode.

14 displays solid dielectric.

15 displays separator for graphite fuel cell.

【0062】

plasma treatment condition

mixed gas of processed gas: oxygen 1SLM+sulfur dioxide 0.3SLM+argon 8.7SLM

discharge condition: waveform (a), raising/lowering time $10\mu\text{s}$, wave peak value 7.2 kV, frequency 10 KHz, process time 5 second

【0063】

As for result of analyzing surface state of separator for graphite fuel cell after treating with ESCA, as for amount of oxygen of surface as for 25 atom%, sulfur amount they were 6 atom%.

In addition, static contact angle for water of separator after treating, the droplet it did water drop of $2\mu\text{L}$, measured with semiautomatic angle of contact meter (Kyowa Interface

計(協和界面科学社製、CA-X150)で測定した。

その結果、0°(濡れ広がり状態)まで親水化されたことが分かった。

さらに、処理品を 80 deg C、湿度 95%の環境下で 1ヶ月間経過後の静的接触角も 0°であり、親水性が維持されていた。

【0064】

これは、本発明のプラズマ処理により、表面にスルホン基およびカルボン酸基からなる親水基が存在することで、親水化が実現されたものであることを示している。

【0065】

比較例 1

パルス電界の代わりに、周波数 12.2kHz の sin 波形の電圧を印加したこと以外は実施例 1 と同様にして処理を行ったが、放電発生に必要な電圧が 10kV 以上を要し、放電状態はアーク放電であったために、セパレータに落雷して穴があいた。

【0066】

比較例 2

パルス電界の代わりに、周波数 12.2kHz の sin 波形の電圧を印加したこと以外は実施例 2 と同様にして処理を行った。

放電発生に必要な電圧が 10kV 以上を要し、放電状態はアーク放電となり、放電面の至る所で雨状に微細な放電柱がたち、セパレータに無数の穴があいた。

【0067】

【発明の効果】

本発明の親水化処理方法は、上述の構成よりなり、大気圧下に燃料電池セパレータの連続的な表面処理、部分的な表面処理等を、簡便な装置、かつ、少量の処理用ガスにより均一に行うことができる。

また、表面処理工程が容易にインライン化できるので、燃料電池セパレータの親水化を容易に行え、さらに接着性、印刷性を容易に改質することも可能である。

また、本発明の処理方法により得られた親水化セパレータを用いた燃料電池は、高容量化に対応できる。

【図面の簡単な説明】

Science Co. Ltd. (DB 69-270-5080) supplied, CA-X150).

As a result, 0 * hydrophilicization it was done to (Getting wet spreading state), understood densely.

Furthermore, processed article 0 * with, hydrophilicity had been maintained also static contact angle of 1 month period lapse later under environment of 80 deg C、 humidity 95%.

[0064]

This, it is something where hydrophilicization is actualized by fact that hydrophilic group which consists of sulfone group and carboxylic acid group in surface with plasma treatment of this invention, exists, it has shown densely.

[0065]

Comparative Example 1

In place of pulse electric field, other than thing which voltage of the sin waveform of frequency 12.2 KHz imparting is done it treated with as similar to the Working Example 1, but voltage which is necessary for discharge occurrence required 10 kV or greater, because it was a arc discharge, lightning strike doing in the separator, hole opened discharged state.

[0066]

Comparative Example 2

In place of pulse electric field, other than thing which voltage of the sin waveform of frequency 12.2 KHz imparting is done it treated with as similar to the Working Example 2.

voltage which is necessary for discharge occurrence required 10 kV or greater, became arc discharge, discharge surface in rain condition microscopic discharge column, the innumerable hole opened discharged state everywhere in separator.

[0067]

[Effects of the Invention]

hydrophilic treatment method of this invention consists of above-mentioned constitution, continuous surface treatment, partial surface treatment etc of fuel cell separator, is done in uniform, with simple equipment、 and gas for treatment of trace is possible densely under atmospheric pressure.

In addition, because surface treatment process making inline is possible easily, easily does hydrophilicization of fuel cell separator, furthermore also it is possible to improve adhesiveness、 printing easily.

In addition, it can correspond fuel cell which uses hydrophilicization separator which is acquired with treatment method of this invention, to capacity increase.

[Brief Explanation of the Drawing(s)]

【図1】

本発明の放電プラズマ処理装置の例を示す模式断面図である。

[Figure 1]

It is a model cross section which shows example of plasma discharge treatment device of the this invention.

【図2】

放電プラズマ処理装置の固体誘電体容器と一の電極との配設の一例図である。

[Figure 2]

It is a one example figure of arrangement of solid dielectric container and one electrode of the plasma discharge treatment device.

【図3】

放電プラズマ処理装置の固体誘電体容器と一の電極との配設の一例図である。

[Figure 3]

It is a one example figure of arrangement of solid dielectric container and one electrode of the plasma discharge treatment device.

【図4】

放電プラズマ処理装置のガス吹き出し口の一例図である。

[Figure 4]

It is a one example figure of gas blowing nozzle of plasma discharge treatment device.

【図5】

放電プラズマ処理装置のガス吹き出し口の一例図である。

[Figure 5]

It is a one example figure of gas blowing nozzle of plasma discharge treatment device.

【図6】

放電プラズマ処理装置のガス吹き出し口の一例図である。

[Figure 6]

It is a one example figure of gas blowing nozzle of plasma discharge treatment device.

【図7】

本発明のパルス電界の例を示す電圧波形の図である。

[Figure 7]

It is a figure of voltage waveform which shows example of pulse electric field of this invention.

【図8】

パルス電界の動作に対応する出力パルス信号の図である。

[Figure 8]

It is a figure of output pulse signal which corresponds to operation of pulse electric field.

【図9】

実施例2で用いたプラズマ処理装置の電極と被処理体の形状との関係を示す模式図である。

[Figure 9]

It is a schematic diagram which shows relationship between electrode of the plasma treatment device which is used with Working Example 2 and shape of body being treated.

【符号の説明】

[Explanation of Symbols in Drawings]

1

電源(高電圧パルス電源)

1

power supply (high voltage pulse power supply)

11

電源(高電圧パルス電源)

11

power supply (high voltage pulse power supply)

12

上部電極

12

upper electrode

13

下部電極

13

bottom electrode

14

固体誘電体

15

燃料電池用セパレータ

2

一の電極

3

他の電極

4

固体誘電体容器

5

燃料電池用セパレータ

6

ガス導入口

7

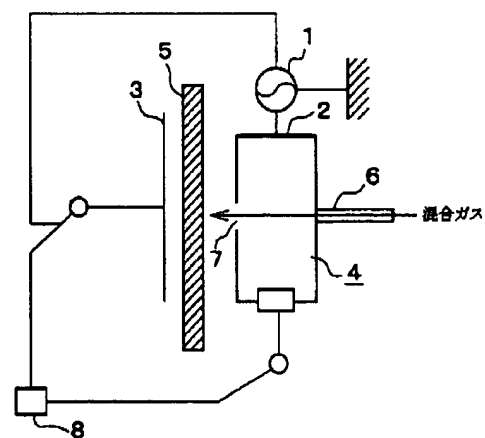
ガス吹き出し口

8

治具

Drawings

【図1】



【図2】

14

solid dielectric

15

Separator for fuel cell

2

electrode of 1

3

Other electrode

4

solid dielectric container

5

Separator for fuel cell

6

gas inlet

7

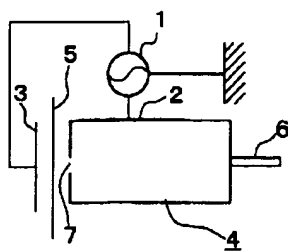
gas blowing nozzle

8

fixture

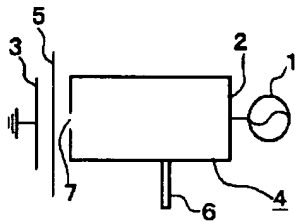
[Figure 1]

[Figure 2]



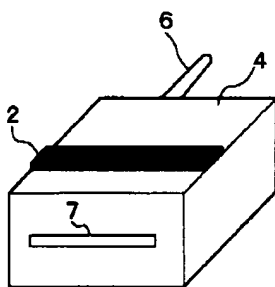
【図3】

[Figure 3]



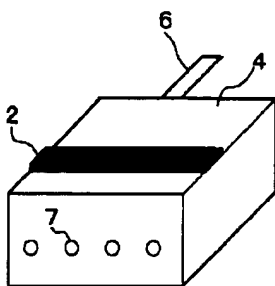
【図4】

[Figure 4]



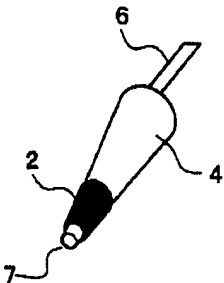
【図5】

[Figure 5]



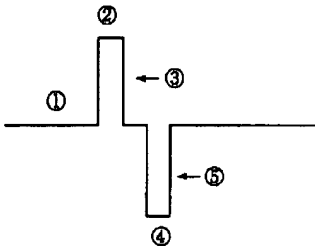
【図6】

[Figure 6]



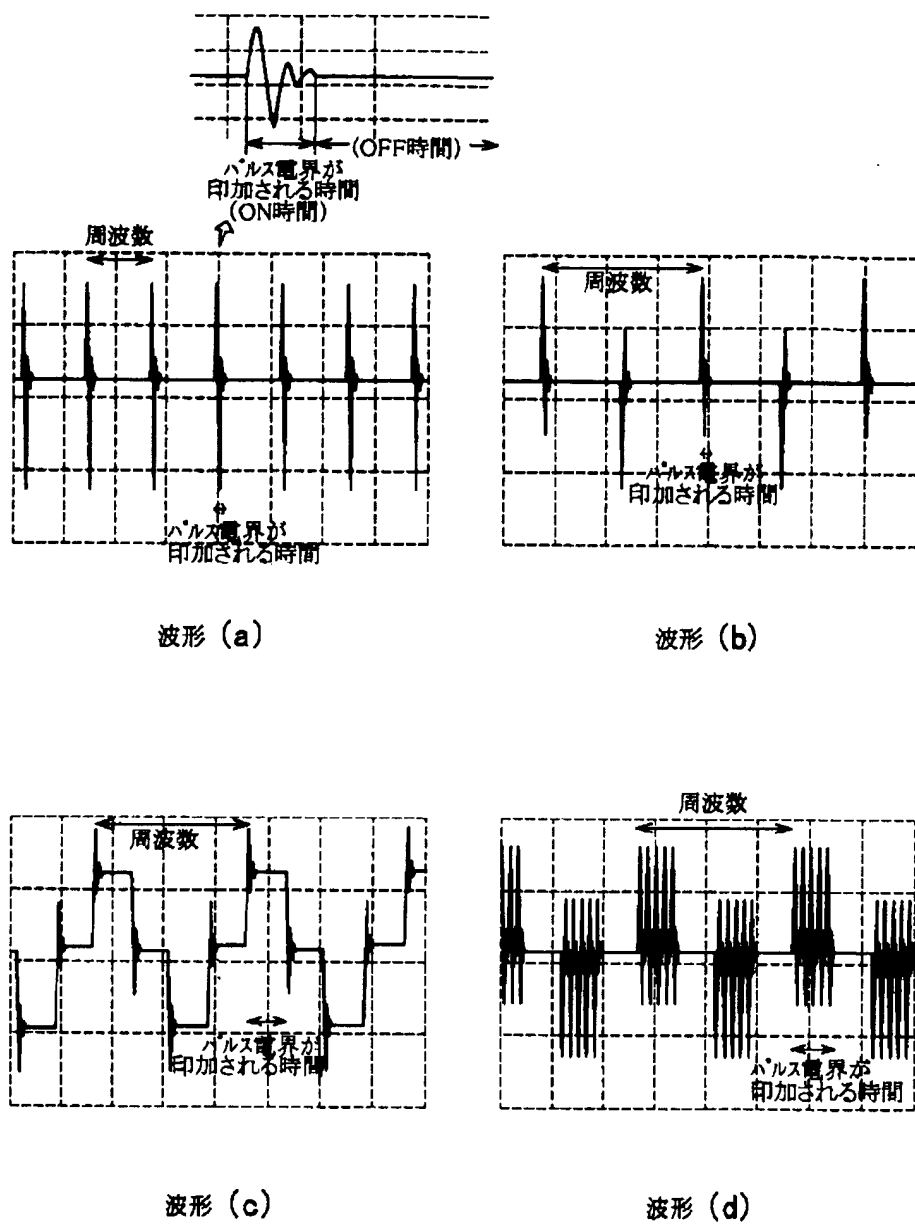
【図8】

[Figure 8]



【図7】

[Figure 7]



【図9】

[Figure 9]

